

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/003449

International filing date: 02 March 2005 (02.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-091852
Filing date: 26 March 2004 (26.03.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 28 April 2005 (28.04.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

PCT/JP 2005/003449

07. 3. 2005

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2004年 3月26日

出願番号
Application Number: 特願2004-091852

パリ条約による外国への出願
に用いる優先権の主張の基礎
となる出願の国コードと出願
番号

The country code and number
of your priority application,
to be used for filing abroad
under the Paris Convention, is

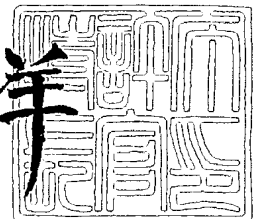
J P 2004-091852

出願人
Applicant(s): 中国電力株式会社
三菱重工業株式会社

2005年 4月15日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川 洋



出証番号 出証特2005-3034175

【書類名】 特許願
【整理番号】 CD031105
【提出日】 平成16年 3月26日
【あて先】 特許庁長官殿
【発明者】
 【住所又は居所】 広島県広島市中区小町 4 番 3 3 号 中国電力株式会社内
 【氏名】 角谷 貢
【発明者】
 【住所又は居所】 広島市西区観音新町四丁目 6 番 2 2 号 三菱重工業株式会社 広島
 島研究所内
 【氏名】 清木 義夫
【発明者】
 【住所又は居所】 長崎県長崎市飽の浦町 1 番 1 号 三菱重工業株式会社 長崎造船
 所内
 【氏名】 常岡 晋
【特許出願人】
 【識別番号】 000211307
 【氏名又は名称】 中国電力株式会社
【特許出願人】
 【識別番号】 000006208
 【氏名又は名称】 三菱重工業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 110000176
 【氏名又は名称】 一色国際特許業務法人
 【代表者】 一色 健輔
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 211868
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

二酸化炭素を含んだガスを耐圧容器に流通させて前記二酸化炭素を冷却固化し、
前記耐圧容器を密閉し、
前記固化した二酸化炭素を昇温させて気化させ、
前記二酸化炭素が気化することによる前記耐圧容器内部の圧力上昇により前記二酸化炭素を液化し、
液化した前記二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出すること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 2】

請求項 1 に記載の二酸化炭素の分離方法であって、
前記冷却固化は、前記二酸化炭素を含んだガスを、前記耐圧容器内に設けられ内部に冷媒が流通される冷媒流通管の外面に接触させることにより行われること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 3】

請求項 2 に記載の二酸化炭素の分離方法であって、
前記冷媒流通管は蛇行させて設けられていること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 4】

請求項 1 に記載の二酸化炭素の分離方法であって、
前記固化した二酸化炭素の前記昇温は前記耐圧容器に設けられた伝熱管もしくは電熱式のヒータにより行われること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 5】

請求項 1 に記載の二酸化炭素の分離方法であって、
前記耐圧容器は、前記二酸化炭素を含んだガスを前記耐圧容器に流入させるガス流入口と、前記耐圧容器内のガスを前記耐圧容器の外に排出するガス排出口と、前記液化した二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出する液体排出口と、を有すること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 6】

請求項 1 または 2 に記載の二酸化炭素の分離方法であって、
前記ガスには窒素酸化物もしくは硫黄酸化物が含まれることを特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 7】

その内部にガスを流入させるガス流入口、その内部のガスを排出するガス排出口、及びその内部の液体を排出する液体排出口、を有する耐圧容器と、前記耐圧容器の内部に設けられる冷却器と、前記耐圧容器の内部を昇温させる伝熱器と、を用いて行う二酸化炭素の分離方法であって、
前記ガス流入口から二酸化炭素を含んだガスを前記耐圧容器に流入し、
前記ガスを前記冷却器に接触させることにより前記二酸化炭素を冷却固化し、
前記ガス流入口を閉じるとともに前記耐圧容器を密閉し、
前記伝熱器により前記固化した二酸化炭素を昇温させて気化させ、
前記二酸化炭素が気化することによる前記耐圧容器内部の圧力上昇により前記二酸化炭素を液化し、
前記液体排出口から液化した前記二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出すること、
を特徴とする二酸化炭素の分離方法。

【請求項 8】

その内部にガスを流入させるガス流入口、その内部のガスを排出するガス排出口、及びその内部の液体を排出する液体排出口、前記ガス流入口に流入する気体の量を制御する制御バルブ、前記ガス排出口から排出させる気体の量を制御する制御バルブ、及び前記液体

排出口から排出する液体の量を制御する制御バルブ、を有する耐圧容器と、
前記耐圧容器の内部に設けられる冷却器と、
前記耐圧容器の内部を昇温させる伝熱器と、
を備えることを特徴とする二酸化炭素分離装置。

【書類名】明細書

【発明の名称】二酸化炭素の分離方法及び二酸化炭素分離装置

【技術分野】

【0001】

本発明は、二酸化炭素の分離方法及び二酸化炭素分離装置に関し、とくにガス中に含まれる二酸化炭素を効率よく分離するための技術に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、地球温暖化防止のために大規模なガス排出源から排出される二酸化炭素（ CO_2 ）を削減することが求められており、ガス排出源から排出される排ガスに含まれる二酸化炭素を効率よく回収するための技術研究が各所で進められている。ここで排ガスに含まれる二酸化炭素を回収する技術において、排ガスから二酸化炭素を分離する技術はそのための要素技術として重要である。そのような技術として、例えば特許文献1には、排ガス中の炭酸ガスをドライアイスとして固化・分離し、さらに加熱・加圧することにより液体の二酸化炭素とする技術が開示されている。

【特許文献1】特開2000-317302号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

上記方法は、例えば図4に示す方法により実施することができる。図4に示す方法では、まずその外側に冷媒400を流通させた熱交換器の伝熱管402の内部に二酸化炭素を分離しようとするガス403を流通させ、これによりガス中に含まれる二酸化炭素をドライアイス化（固化）して捕集容器404に捕集する。そして捕集容器404に捕集したドライアイス405を捕集容器403から液化装置406に移し、液体の二酸化炭素407として回収する。なお、ドライアイス405を液化させているのは、貯留や輸送の便宜の為である。

【0004】

ところで、図4に示す方法では、ドライアイス405を伝熱管402の内側に析出させている。このため、析出したドライアイスにより伝熱管402の管路が閉塞され、装置の連続運転もしくは自動運転が難しいという問題がある。また固化部である捕集容器404と液化部である液化装置406とがそれぞれ別体の装置として構成されているため、捕集容器404から液化装置406に搬送する仕組みも必要である。つまり図4に示す方法では、ガス中から二酸化炭素を分離するプロセスを連続的に効率良く運転することができず、とくに火力発電所や製鉄所等のように大量の排ガス発生源に適用しようとする場合には、性能的に必ずしも十分であるとはいえなかった。

【0005】

本発明は以上のような背景に鑑みてなされたもので、ガス中に含まれる二酸化炭素を効率よく分離することができる二酸化炭素の分離方法及び二酸化炭素分離装置を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0006】

上記目的を達成するための本発明のうち請求項1に記載の発明は、二酸化炭素の分離方法であって、二酸化炭素を含んだガスを耐圧容器に流通させて前記二酸化炭素を冷却固化し、前記耐圧容器を密閉し、前記固化した二酸化炭素を昇温させて気化させ、前記二酸化炭素が気化することによる前記耐圧容器内部の圧力上昇により前記二酸化炭素を液化し、液化した前記二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出することとする。

上記方法によれば、二酸化炭素の固化及び液化を同じ耐圧容器内で行うことができる。また上記方法は単純な装置で実現することが可能であり、低コストで効率よく確実にガスから二酸化炭素を分離できる。また特別な液化装置を用いることなく、二酸化炭素を運搬や貯留に便利な液体として排出できる。

【0007】

本発明のうち請求項2に記載の発明は、請求項1に記載の二酸化炭素の分離方法であって、前記冷却固化は、前記二酸化炭素を含んだガスを、前記耐圧容器内に設けられ内部に冷媒が流通される冷媒流通管の外面に接触させることにより行われることとする。

上記方法によれば、ドライアイスは冷媒流通管の外面に析出することとなり、伝熱管の管路が閉塞されることもなく、連続運転や自動運転を容易に実現できる。

【0008】

本発明のうち請求項3に記載の発明は、請求項2に記載の二酸化炭素の分離方法であって、前記冷媒流通管は蛇行させて設けられていることとする。

このように冷媒流通管を蛇行させて設けることで、ガスと冷媒流通管の接触面積を十分に確保することができ、二酸化炭素を効率よく固化させることができる。

【0009】

本発明のうち請求項4に記載の発明は、請求項1に記載の二酸化炭素の分離方法であって、前記固化した二酸化炭素の前記昇温は前記耐圧容器に設けられた伝熱管もしくは電熱式のヒータにより行われることとする。

【0010】

本発明のうち請求項5に記載の発明は、請求項1に記載の二酸化炭素の分離方法であって、前記耐圧容器は、前記二酸化炭素を含んだガスを前記耐圧容器に流入させるガス流入口と、前記耐圧容器内のガスを前記耐圧容器の外に排出するガス排出口と、前記液化した二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出する液体排出口と、を有することとする。

【0011】

本発明のうち請求項6に記載の発明は、請求項1または2に記載の二酸化炭素の分離方法であって、前記ガスには窒素酸化物もしくは硫黄酸化物が含まれることとする。

【0012】

本発明のうち請求項7に記載の発明は、その内部にガスを流入させるガス流入口、その内部のガスを排出するガス排出口、及びその内部の液体を排出する液体排出口、を有する耐圧容器と、前記耐圧容器の内部に設けられる冷却器と、前記耐圧容器の内部を昇温させる伝熱器と、を用いて行う二酸化炭素の分離方法であって、前記ガス流入口から二酸化炭素を含んだガスを前記耐圧容器に流入し、前記ガスを前記冷却器に接触させることにより前記二酸化炭素を冷却固化し、前記ガス流入口を閉じるとともに前記耐圧容器を密閉し、前記伝熱器により前記固化した二酸化炭素を昇温させて気化させ、前記二酸化炭素が気化することによる前記耐圧容器内部の圧力上昇により前記二酸化炭素を液化し、前記液体排出口から液化した前記二酸化炭素を前記耐圧容器の外に排出することとする。

【0013】

本発明のうち請求項7に記載の発明は、二酸化炭素分離装置であって、その内部にガスを流入させるガス流入口、その内部のガスを排出するガス排出口、及びその内部の液体を排出する液体排出口、前記ガス流入口に流入する気体の量を制御する制御バルブ、前記ガス排出口から排出させる気体の量を制御する制御バルブ、及び前記液体排出口から排出する液体の量を制御する制御バルブ、を有する耐圧容器と、前記耐圧容器の内部に設けられる冷却器と、前記耐圧容器の内部を昇温させる伝熱器と、を備えることとする。

【発明の効果】**【0014】**

本発明によれば、ガス中に含まれる二酸化炭素を効率よく分離することができる。

【発明を実施するための最良の形態】**【0015】**

以下、本発明の一実施形態について詳述する。

【0016】

==装置構成==

図1は本発明の一実施形態として説明する二酸化炭素分離装置1の概略構成である。本図において、耐圧容器10は縦・横・高さがそれぞれ数m程度の略直方体形状の金属製（

例えばステンレス)である。耐圧容器10の上面所定位置には二酸化炭素(CO_2)を含んだガスを流入させるガス流入口21が設けられている。一方、耐圧容器10の下面所定位置には、上記ガスに含まれる二酸化炭素以外の成分を耐圧容器10の外部に排出するガス排出口22が設けられている。さらに耐圧容器10の下面所定位置には、上記ガス排出口22とは別に、耐圧容器10の底に溜まる液体を排出するための液体排出口23が設けられている。なお、ガス流入口21から流入したガスを耐圧容器10内に所定時間以上滞在させるべく、ガス排出口22はガス流入口21から所定距離だけ離間させた位置に設けられている。

【0017】

ガス流入口21に連結する配管(ガス流入管31)には制御バルブ41が設けられている。またガス排出口22に連結する配管(ガス排出管32)には制御バルブ42が設けられている。また液体排出口23に連結する配管(液体排出管33)には制御バルブ43が設けられている。これら制御バルブ41、42、43の全てを閉じることにより耐圧容器10内が完全に密閉される。

【0018】

耐圧容器10の内部には、冷媒を流通させる金属製(例えば銅もしくはステンレス)の冷媒流通管(冷却器)12が配管されている。上記冷媒としては、例えば液体窒素(N_2)が用いられる。冷媒流通管12の上流には冷媒の流量を制御する制御バルブ44が設けられている。冷媒流通管12は、耐圧容器10の内部に流通させるガスとの間の接触面積を十分に確保すべく、耐圧容器10の内部において2本に分岐させている。冷媒流通管12は耐圧容器10の内部で蛇行させてあり、これによってもガスとの間の接触面積が十分に確保されるようにしている。

【0019】

耐圧容器10の壁面には伝熱管(伝熱器)13が埋設されている。伝熱管13の上流には伝熱管13に流通させる熱媒体の流量を制御する制御バルブ45が設けられている。上記熱媒体は例えば液体窒素(N_2)や水であり、熱源14から伝熱管13に輸送されてくる。また伝熱管13は耐圧容器10の壁面に埋設するのではなく、耐圧容器10の内部に配管するようにしてもよい。伝熱管13に代えて電熱式のヒータ(例えばシリコンゴムヒータ、フッ素樹脂ヒータ)を用いてもよい。

【0020】

耐圧容器10には、耐圧容器10内のガスの温度を計測するセンサ、冷媒流通管12表面の温度を計測するセンサ等、各種のセンサ(不図示)が設けられている。各センサの出力値は、図示しない計測機器やコンピュータに入力され、オペレータによってモニタされている。また耐圧容器10の所定位置には図示しない小窓が設けられており、この小窓から耐圧容器10の内部の様子を目視できるようになっている。

【0021】

==プロセス説明==

次に図2に示すプロセスフローとともに、上記二酸化炭素分離装置1を用いて行われる、ガス中に含まれる二酸化炭素を分離するプロセスについて説明する。なお、以下の説明において、二酸化炭素を分離しようとするガスには二酸化炭素以外の成分として窒素酸化物や硫黄酸化物が含まれているものとする。また初期状態では、制御バルブ41、42、43は全て閉じられているものとする(S201)。

【0022】

まず制御バルブ44を開いて冷媒流通管12に冷媒の流通を開始する(S202)。ここでは二酸化炭素は固化するが N_2 は液化しない温度に冷媒流通管12の表面の温度を低下させる。図3は二酸化炭素のT-P(温度-圧力)線図である。この図から把握されるように、二酸化炭素の昇華点は1atmで -78.5°C である。従って1atmを前提とした場合には冷媒流通管12の表面温度を少なくとも -78.5°C 以下とする。

【0023】

冷媒流通管12の表面温度が上記温度に達すると、次に制御バルブ41及び制御バルブ

42を開いて制御バルブ41から二酸化炭素を分離しようとするガスを流入し、耐圧容器10へのガスの流通を開始する(S203)。ここで耐圧容器10を流通するガスは冷媒流通管12によって冷却され、ガス中に含まれる二酸化炭素が冷媒流通管12の外面にドライアイス50として析出してくる(S204)。一方、耐圧容器10内に流入されたガスは耐圧容器10内を移動して制御バルブ42から耐圧容器10の外に排出される(S205)。

【0024】

冷媒流通管12表面に析出したドライアイス50の量が所定量に達したところで(S206: YES)、次に制御バルブ41及び制御バルブ42を閉じ、耐圧容器10を密閉する(S207)。また制御バルブ44を閉じて冷媒流通管12の冷媒(液体窒素)の流通を停止する(S208)。なお、ドライアイス50の析出量が所定量に達したかどうかの判断は、例えば小窓から耐圧容器10内を目視したり、所定時間が経過したりしたことをもって行う。

【0025】

次に制御バルブ45を開いて伝熱管13に熱媒体を流通させ(S209)、耐圧容器10内の温度を上昇させる。ここで耐圧容器10内の温度上昇に伴い、冷媒流通管12の表面に析出していたドライアイス50が気化(昇華)し始める(S210)。一方、ドライアイス50の気化することによって耐圧容器10内の圧力が上昇する。図3に示すように、二酸化炭素の三重点は、 $5.11 \text{ atm} / -56.6^\circ\text{C}$ である。従ってドライアイス50が気化して耐圧容器10内が三重点における温度及び圧力より高い温度及び圧力になると耐圧容器10内の二酸化炭素の一部が凝縮し始め、凝縮により生じた二酸化炭素(液体)が耐圧容器10の底に溜まり始める(S211)。

【0026】

冷媒流通管12の表面に析出しているドライアイス50が完全に気化もしくは液化したところで(S211: YES)、次に制御バルブ43を開放する。これにより耐圧容器の底に溜まった二酸化炭素(液体)が耐圧容器10内圧によって液体排出口23から耐圧容器10の外に排出される(S213)。なお、ドライアイス50が完全に気化もしくは液化したかどうかの判断は、例えば小窓からの耐圧容器10内の目視や所定時間が経過したことをもって行う。また液体排出口23に連結する液体排出管33内を二酸化炭素が液体の状態のまま保たれる圧力及び温度としておくことで、二酸化炭素を液体のまま耐圧容器10の外に排出することができる。

【0027】

以上に説明したように、本実施形態の二酸化炭素分離装置1によれば、ガス中に含まれる二酸化炭素を効率よく確実にガスから分離することができる。なお、引き続き別のガスについて二酸化炭素を分離しようとする場合には(S214: NO)、制御バルブ44及び伝熱管13の制御バルブ45を閉じ、再びS201からのプロセスを繰り返すことになる。

【0028】

上記二酸化炭素分離装置1によれば、二酸化炭素の固化及び液化を同じ耐圧容器10内で行うことができる。また上記二酸化炭素分離装置1は、装置構成が単純であり低コストで実施することができる。またドライアイス50が伝熱管(冷媒流通管12)の外面に析出するため、伝熱管13の管路が閉塞されることもなく、連続運転や自動運転を実施し易い。また特別な液化装置を用いることなく、運搬や貯留に便利な液体の状態での二酸化炭素を排出することができる。

【0029】

以上本発明の一実施形態について説明したが、以上の実施形態の説明は本発明の理解を容易にするためのものであり、本発明を限定するものではない。本発明はその趣旨を逸脱することなく、変更、改良され得ると共に本発明にはその等価物が含まれることは勿論である。

【0030】

例えば、制御バルブ 4 1 ~ 4 5 をそれぞれ電磁バルブとするとともに、各電磁バルブを制御するための制御ラインをコンピュータに接続し、コンピュータのハードウェアや当該ハードウェア上で動作する制御ソフトウェアにより上記電磁バルブを遠隔制御するようにしてもよい。また、上記各種センサの出力値に基づいて、上述したプロセスの全部又は一部を自動実行させるようにしてもよい。

【図面の簡単な説明】

【0 0 3 1】

【図 1】本発明の一実施形態として説明する、二酸化炭素分離装置 1 の概略構成を示す図である。

【図 2】本発明の一実施形態として説明する、ガス中に含まれる二酸化炭素を分離するプロセスを説明するプロセスフローを示す図である。

【図 3】二酸化炭素の T - P（温度 - 圧力）線図を示す図である。

【図 4】二酸化炭素を分離する技術の一つを説明する図である。

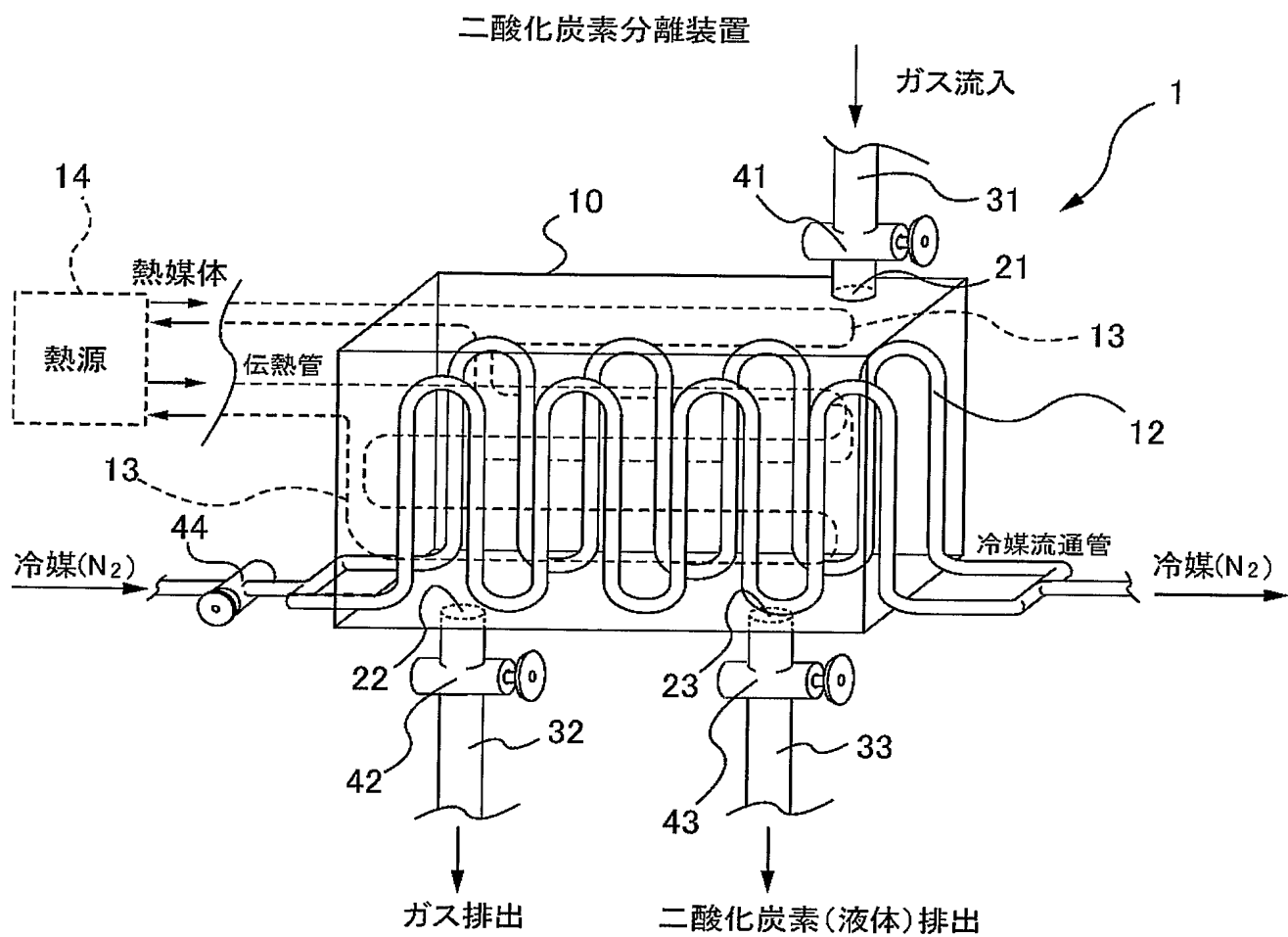
【符号の説明】

【0 0 3 2】

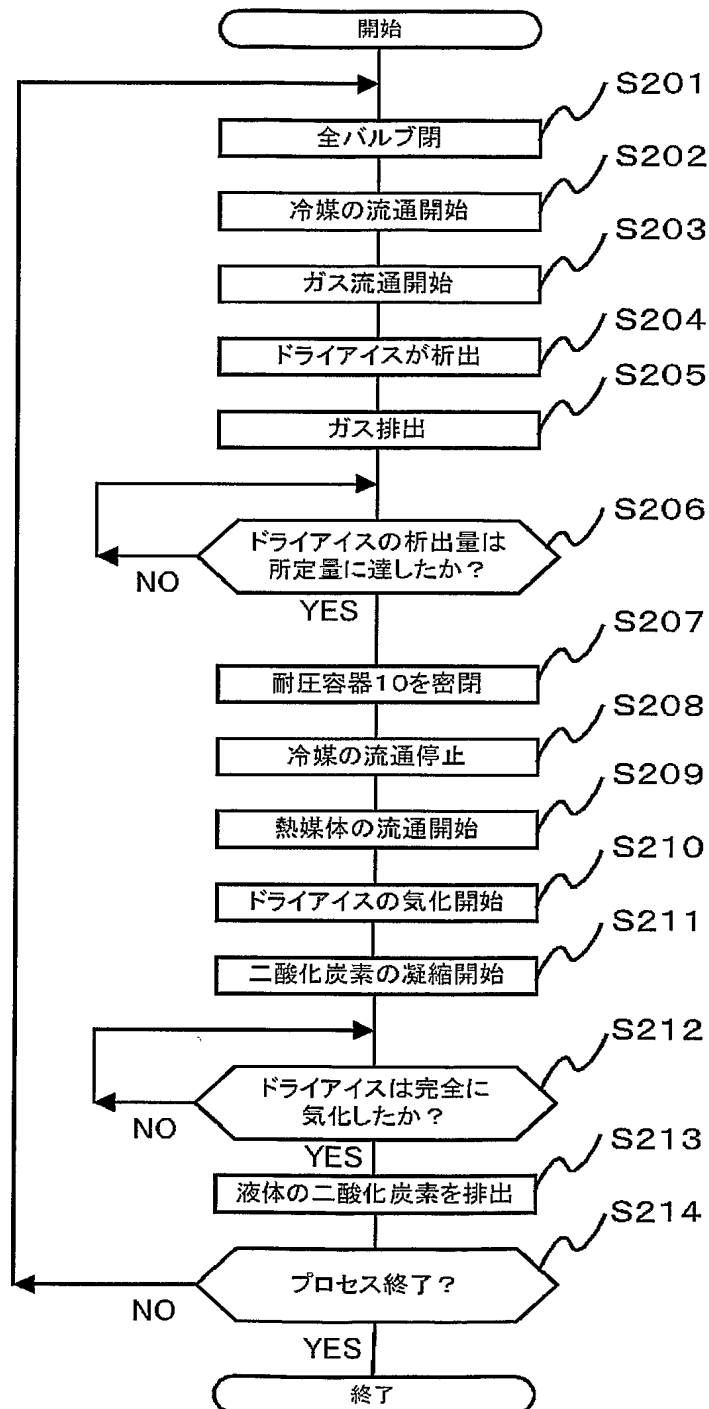
- 1 二酸化炭素分離装置
- 1 0 耐圧容器
- 1 2 冷媒流通管（冷却器）
- 1 3 伝熱管（電熱器）
- 2 1 ガス流入口
- 2 2 ガス排出口
- 2 3 液体排出口
- 3 1 ガス流入管
- 3 2 ガス排出管
- 3 3 液体排出管
- 4 1 制御バルブ（ガス流入管）
- 4 2 制御バルブ（ガス排出管）
- 4 3 制御バルブ（液体排出管）
- 4 4 制御バルブ（冷媒流通管）
- 4 5 制御バルブ（伝熱管）
- 5 0 ドライアイス

【書類名】 図面

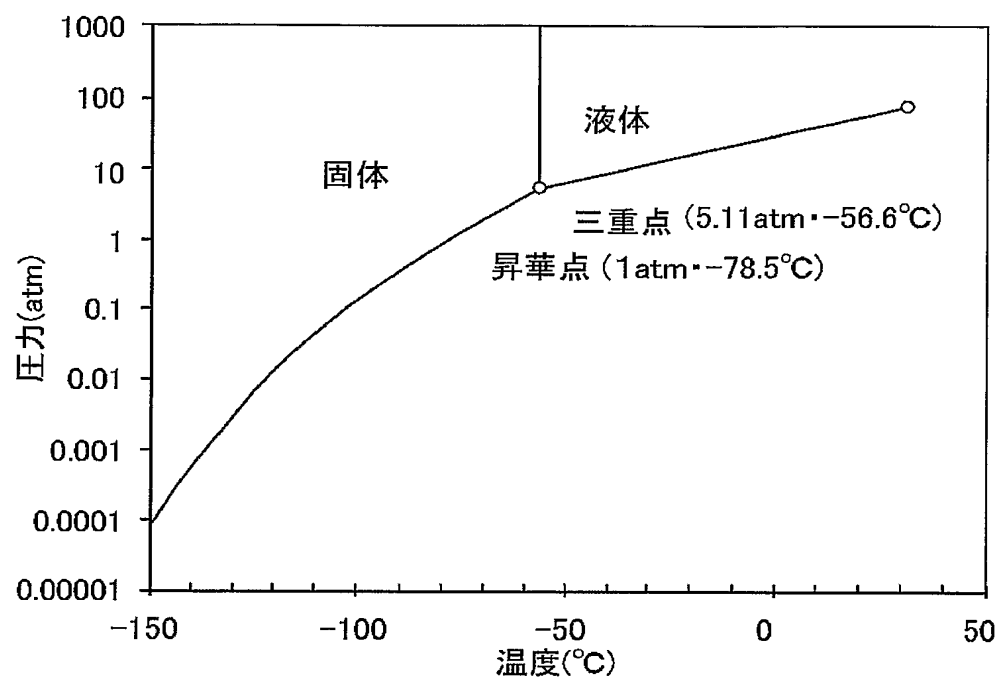
【図 1】



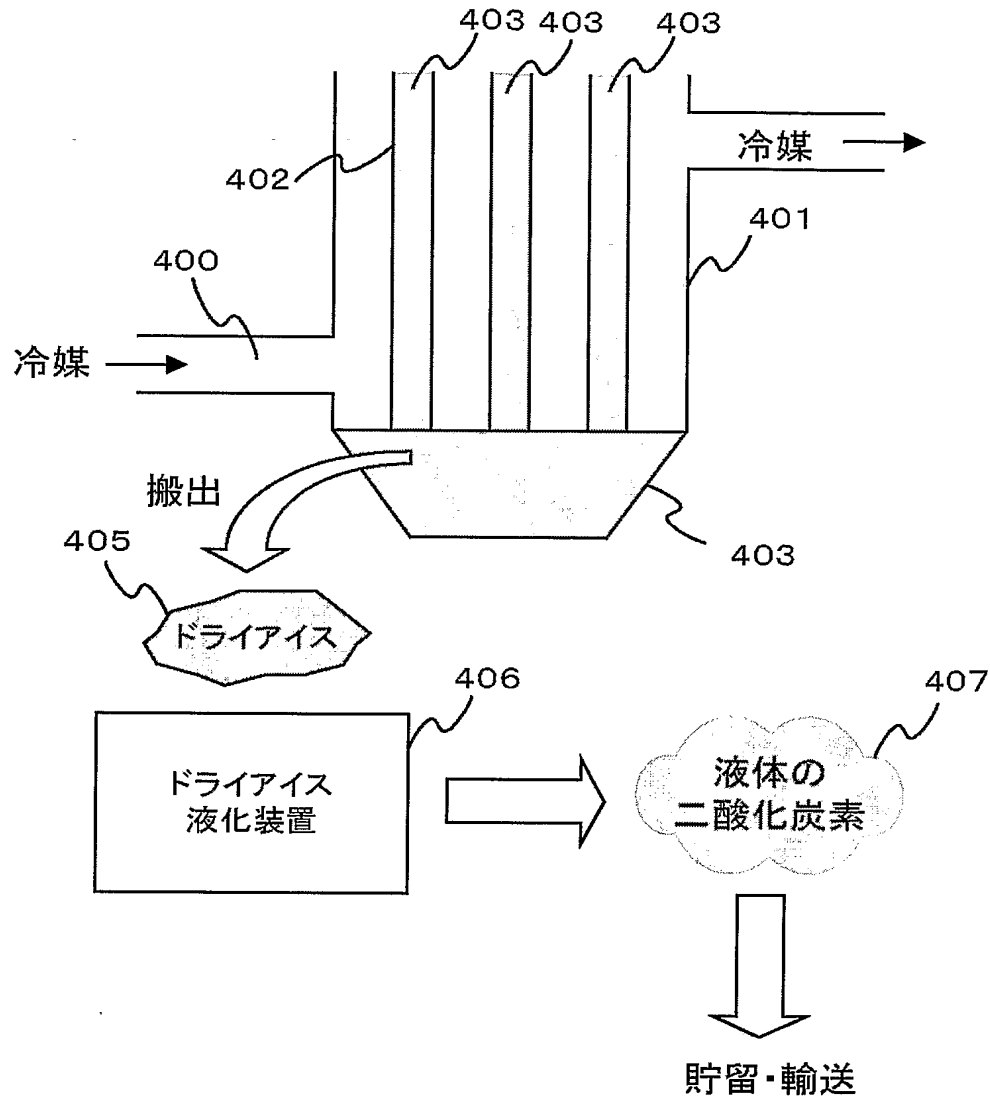
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 ガス中に含まれる二酸化炭素を効率よくガスから分離することができるようにする。

【解決手段】 二酸化炭素を含んだガスを耐圧容器 1 0 に流通させて二酸化炭素を冷却固化し、耐圧容器 1 0 を密閉し、固化した二酸化炭素を昇温させて気化させ、二酸化炭素が気化することによる耐圧容器 1 0 の内部の圧力上昇により二酸化炭素を液化させ、液化した二酸化炭素を耐圧容器 1 0 の外に排出するようにする。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 4 - 0 9 1 8 5 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 2 1 1 3 0 7]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 7 日
[変更理由]	新規登録
住 所	広島県広島市中区小町 4 番 3 3 号
氏 名	中国電力株式会社

特願 2 0 0 4 - 0 9 1 8 5 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 6 2 0 8]

1. 変更年月日

2 0 0 3 年 5 月 6 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都港区港南二丁目 1 6 番 5 号

氏 名

三菱重工業株式会社